

30.8.2004

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

REC'D 11 NOV 2004	
WIPO	PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2004年 3月15日

出願番号  
Application Number: 特願2004-073600  
[ST. 10/C]: [JP2004-073600]

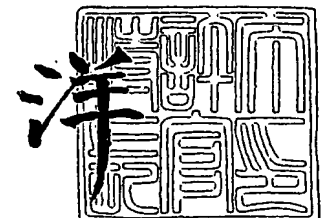
出願人  
Applicant(s): ローツェ株式会社  
独立行政法人科学技術振興機構

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年10月28日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 R04003  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01L 21/36  
【発明者】  
    【住所又は居所】 広島県深安郡神辺町字道上 1588 番地の 2 ローツェ株式会社  
                                内  
    【氏名】 櫻井 俊男  
【発明者】  
    【住所又は居所】 広島県東広島市鏡山 3 丁目 10-23 科学技術振興機構研究成  
                                果活用プラザ広島内  
    【氏名】 富本 博之  
【発明者】  
    【住所又は居所】 広島県東広島市西条土与丸 1 丁目 2 番 12-305 号  
    【氏名】 坂上 弘之  
【発明者】  
    【住所又は居所】 広島県東広島市西条中央 6 丁目 26-26 エルドラード A 番館 6  
                                01  
    【氏名】 高萩 隆行  
【発明者】  
    【住所又は居所】 広島県東広島市高屋美が丘 8 丁目 9-3  
    【氏名】 新宮原 正三  
【特許出願人】  
    【識別番号】 591213232  
    【住所又は居所】 広島県深安郡神辺町字道上 1588 番地の 2  
    【氏名又は名称】 ローツェ株式会社  
    【代表者】 崎谷 文雄  
【特許出願人】  
    【識別番号】 396020800  
    【住所又は居所】 埼玉県川口市本町 4-1-8  
    【氏名又は名称】 科学技術振興機構  
    【代表者】 沖村 憲樹  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 088352  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1

## 【書類名】特許請求の範囲

## 【請求項1】

少なくともダイヤモンド微粒子と空隙とを有する膜からなる低誘電率膜において、前記ダイヤモンド微粒子表面が、下記(a)の少なくとも一種の単独物質、または、下記(a)の少なくとも一種と下記(b)の少なくとも一種との混合物質によって処理されたことを特徴とする低誘電率膜。

(a)一般式  $X_n R^{3-n} Si(OSi)_m R^{3-n} X_n$  で表される物質。

(b)一般式  $X_3 Si(OSi)_m X_3$  で表される物質。

(但し、 $n=1$ または2、 $m=0$ から3の整数。Xはハロゲン基、C1からC6のアルコキシ基またはフェノキシ基、RはC1からC6のアルキル基。)

## 【請求項2】

前記(a)の一般式および前記(b)の一般式において、Xが塩素基、メトキシ基、エトキシ基からなる群から選ばれる少なくとも1種であり、Rがメチル基またはエチル基であることを特徴とする請求項1に記載の低誘電率膜。

## 【請求項3】

前記(a)の一般式および前記(b)の一般式において、mが1であることを特徴とする請求項1または2のいずれかに記載の低誘電率膜。

## 【請求項4】

前記(a)の一般式において、nが1であることを特徴とする請求項1から3のいずれかに記載の低誘電率膜。

## 【請求項5】

前記(a)の一般式の物質が、ジクロロテトラメチルジシロキサン、ジメトキシテトラメチルジシロキサン、テトラクロロジメチルジシロキサン、テトラメトキシジメチルジシロキサンからなる群から選ばれる少なくとも1種であり、前記(b)の一般式の物質が、ヘキサクロロジシロキサン、ヘキサメトキシジシロキサン、ヘキサエトキシジシロキサンとからなる群から選ばれる少なくとも1種であることを特徴とする請求項1に記載の低誘電率膜。

## 【請求項6】

少なくともダイヤモンド微粒子と空隙とを有する膜からなる低誘電率膜において、前記ダイヤモンド微粒子表面を、XがC1からC6のアルコキシ基またはフェノキシ基である前記(b)の一般式の少なくとも一種によって処理することを特徴とする低誘電率膜。

## 【請求項7】

請求項1から6のいずれかに記載の低誘電率膜を少なくとも一つの構成要素として有する電子部品。

## 【請求項8】

ダイヤモンド微粒子表面上にある水酸基と、前記(a)の少なくとも一種の単独物質と、または、前記(a)の少なくとも一種と前記(b)の少なくとも一種との混合物質とを化学反応させることを特徴とする低誘電率膜の製造方法。

## 【請求項9】

前記(a)の一般式の物質が、ジクロロテトラメチルジシロキサン、ジメトキシテトラメチルジシロキサン、テトラクロロジメチルジシロキサン、テトラメトキシジメチルジシロキサンからなる群のうちの少なくとも1種であり、前記(b)の一般式の物質が、ヘキサクロロジシロキサン、ヘキサメトキシジシロキサン、ヘキサエトキシジシロキサンとからなる群のうちの少なくとも1種であることを特徴とする請求項8に記載の低誘電率膜の製造方法。

## 【書類名】明細書

【発明の名称】ダイヤモンド微粒子低誘電率膜、電子部品及び低誘電率膜の製造方法。

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、ダイヤモンド微粒子を堆積したポーラス構造による低誘電率膜と、これを有する高集積度、高速動作型の半導体集積回路素子などの電子部品、並びに低誘電率膜の製造方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

半導体集積回路素子のうち、特に超LSIデバイスでは、配線の微細化・高集積化に伴い、デバイス中に作られる配線を通る信号の遅延が、消費電力の低下とともに大きな課題となっている。特に高速ロジックデバイスでは、配線の抵抗や分布容量によるRC遅延が最大の課題となっており、中でも分布容量を小さくするために、配線間の絶縁材料に低誘電率の材料を用いることが必要とされている。

## 【0003】

従来、半導体集積回路内の絶縁膜としては、シリカ膜(SiO<sub>2</sub>)、酸化タンタル膜(Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>)、酸化アルミニウム膜(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、窒化膜(Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)などが使用され、特に多層配線間の絶縁材料として、窒化膜、有機物やフッ素を有するシリカ膜が低誘電率膜として使用され、或いは、検討されている。また、さらなる低誘電率化のための絶縁膜として、フッ素樹脂、発泡状有機シリカ膜を焼成したシリカ膜、シリカ微粒子を堆積したポーラスシリカ膜などが検討されている。

## 【0004】

従来、ダイヤモンドは熱伝導度や機械的強度が、他の材料より優れているため、集積度が高く発熱量の多い半導体デバイスの放熱には好適な材料であることから研究されている。例えば、特開平6-97671号公報では、スパッタ法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法などの製膜法により、厚さ5μmのダイヤモンド膜を提案している。また、特開平9-263488号公報では、ダイヤモンド微粒子を基板上に散布し、これを核にCVD(化学蒸着堆積)法により炭素を供給してダイヤモンド結晶を成長させる製膜法を提案している。

## 【0005】

本発明者らは、すでに特開2002-110870号公報に提示したように、ポーラス構造のダイヤモンド微粒子膜によって比誘電率2.72を得た。また、特開平2002-289604号公報では、ダイヤモンド微粒子どうしは結合しないため、膜の強度が低いという課題があり、これを解決するためにヘキサクロロジシロキサン処理によりダイヤモンド微粒子間を架橋結合させて強化する方法を提案し、この処理によっても、特開2002-110870号公報と同等な比誘電率が得られることを示した。さらに本発明者らは、硫酸/硝酸からなる混酸中でダイヤモンド微粒子を過熱精製することにより、比誘電率2.1が得られたことを学会で発表している。

## 【0006】

【特許文献1】特開平6-97671号公報

【特許文献2】特開平9-263488号公報

【特許文献3】特開2002-110870号公報

【特許文献4】特開2002-289604号公報

【非特許文献1】第50回応用物理学関係連合講演会予講集No. 2. p913 (2003)

## 【0007】

ここで、従来、低誘電率として知られている材料を次表に列挙する。

材料名	比誘電率
シリカ(プラズマCVD法)	4.2~5.0
フッ素含有シリカ	3.7

ダイヤモンド(単結晶)	5.68
ポーラスシリカ	1.5~2.5
ポーラスダイヤモンド	2.1~2.72
ポリイミド	3.0~3.5
ポリテトラフルオロエチレン	1.9
気体	1.0

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0008】

前述のように、さらなる集積度の向上のために、表中のフッ素含有シリカの比誘電率3.7を下まわる材料を得るために種々研究がなされている。シリカ膜は、それ自体は電気陰性度の高い酸素と珪素の2種類の元素からなるため、配向分極が残り低誘電率膜としては不十分であることから、発泡あるいは微粒子によるポーラスシリカ膜が検討されている。しかし、これらは機械的強度が不十分で実用化には至っていない。また、表中のフッ素樹脂であるポリテトラフルオロエチレンは、十分な比誘電率を有するものの、半導体製造工程における要求耐熱性300℃から400℃以上という過酷な条件が満たされないため使用することが出来ない。表中のポリイミドは耐熱性樹脂ではあるが、300℃から400℃以上では炭化してしまい、また誘電率も高く、やはり使用することが出来ない。

## 【0009】

本発明者らは、前述のように、精製ダイヤモンド微粒子をヘキサクロロジシロキサンで架橋強化すると、微粒子間が結合されて機械的強度があり、且つ、十分な比誘電率を有する低誘電率膜を得た。

## 【0010】

しかし、さらに研究を進めると、図1の□印で示すように、絶縁破壊電圧は1.0MV/cm以上必要となることが0.58MV/cm、絶縁抵抗の逆数であるリーク電流値は10-6A/cm<sup>2</sup>以下であるべきところが0.58MV/cmで10-4A/cm<sup>2</sup>と電気特性が不十分である事が判明した。

## 【発明の効果】

## 【0011】

本発明の方法で処理したポーラスダイヤモンド微粒子膜は、従来のそれより絶縁抵抗が100倍以上向上し、絶縁破壊電圧も3.5倍以上向上し、実用基準に達した。また、ポーラスダイヤモンド微粒子膜の最大の特徴である比誘電率も、処理前後で2.1と変わらないか、或いは1.9程度に低下し、低誘電率膜としての機能は十二分に維持している。また、ダイヤモンド微粒子表面にスルホ基やカルボキシ基が存在する場合は、塩化バリウムなどの金属塩処理を合わせると、いっそうリーク電流の低下、絶縁破壊電圧の上昇を得ることができた。さらに、ダイヤモンドは伝熱性のよい材料として知られており、空隙をもたせても、従来のSOG膜にくらべて、伝熱性で劣る事はなかった。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0012】

課題の原因を追求するために赤外吸収スペクトロスコピーを用いて分析した結果、精製ダイヤモンド微粒子をヘキサクロロジシロキサンのみで処理すると、波数3400cm<sup>-1</sup>でヒドロキシ基のブロードな吸収スペクトルが増加していることが判明した。このヒドロキシ基は、ヘキサクロロジシロキサンの未反応のCl-Si結合が空気中の水分で加水分解し、HO-Si結合になったと考えられる。このような研究の過程を通して、本発明者らは、このヒドロキシ基に親和する水分子と微量に含まれる不純物によってリーク電流をもたられ、絶縁破壊電圧も上がらなかったことをつきとめた。

## 【0013】

本発明者らは、前記電気特性を改良することを目的に、ダイヤモンド微粒子膜の強化剤について鋭意検討した結果、少なくともダイヤモンド微粒子と空隙とを有する低誘電率膜において、前記ダイヤモンド微粒子表面が、少なくとも下記(a)の一般式で表される物

質の少なくとも1種によって処理されることにより、ダイヤモンド微粒子同士が架橋するという強化処理を特徴とする低誘電率膜を開発し、多大な改善を得ることができた。

(a) 一般式  $X_n R_{3-n} Si(O Si)_m R_{3-n} X_n$

(但し、 $n=1$ または2、 $m=0$ から3の整数。Xはハロゲン基、C1からC6のアルコキシ基またはフェノキシ基、RはC1からC6のアルキル基。)

#### 【0014】

さらに、前記ダイヤモンド微粒子表面を、前記(a)の一般式で表される物質単独のみならず、下記(b)の一般式で表される物質の少なくとも1種と前記(a)で表される物質との混合物質によって処理することにより、十分な強度と満足できる電気特性をもつ低誘電率膜を得る事ができた。

(b) 一般式  $X_3 Si(O Si)_m X_3$  で表される物質。

(但し、 $m=0$ から3の整数。Xはハロゲン基、C1からC6のアルコキシ基またはフェノキシ基)

ダイヤモンド微粒子膜を処理する方法としては、少なくとも前記(a)および/または(b)の一般式の化合物(以後、強化剤と呼ぶ)を含む液体中に浸漬する方法、強化剤を含む液体を前記膜の上に塗布する方法、前記膜の上に本発明で使用する物質を含む液体を噴霧する方法、強化剤を単独または溶媒で希釈して加熱、または、常温で蒸気に晒して処理する方法などがある。

#### 【0015】

前記(a)の一般式の化合物と前記(b)の一般式の化合物とを混合する場合は、(a)と(b)とを重量比で2:98~98:2とすることができるが、70:30~10:90とすることがさらに好ましい。この重量比は、ダイヤモンド微粒子表面を処理する前の液体状態での混合重量比とする。気体状態で処理する場合は、各物質の処理温度における蒸気圧を考慮する必要がある。ヒドロキシ基に対しては、ヘキサクロロジシロキサンはヘキサメトキシジシロキサンより反応性が高い。しかし副生成物として前者は塩化水素、後者はメタノールが脱離する。半導体回路の製造過程で本発明の低誘電率膜を形成させる場合、塩素イオンが悪影響を及ぼす場合があり、処理剤としては後者が好ましい。しかし塩素イオンが十分に除去される環境にある場合は前者が使用される。従って前者と後者とを混合して使用する場合は、各種半導体回路の製造工程の状況に応じて混合比は任意とすることができる。

#### 【0016】

前記(a)および/または(b)の一般式で、Xはフッ素、塩素、臭素、ヨウ素からなる群から選ばれた少なくとも1種のハロゲン基、または、C1からC6のアルキルを有するアルコキシ基またはフェノキシ基、RはC1からC6のアルキル基である。ここでアルコキシ基、アルキル基ともC6を超えるとヒドロキシ基との反応速度が遅くなり好ましくない。また、フェノキシ基(C6)は反応性があり、本発明に使用することができる。ここでXとしてハロゲン基かアルコキシ基かの選択基準は、前述の反応性と塩素イオンの除去環境とすることができる。

#### 【0017】

次に、前記(a)および/または(b)の一般式で、 $m$ が3を超えるとシロキサン鎖が長くなり、液状で処理する場合は粘度が高くなりダイヤモンド微粒子間に浸透し難く好ましくない。また、これらシロキサン化合物の蒸気で処理する場合も、 $m$ が3を超えると沸点が高くなり好ましくない。従って、 $m$ が1の場合、即ちジシロキサン化合物が最も好ましい。

#### 【0018】

前記(a)および/または(b)の一般式において、Xが反応性の塩素基、メトキシ基、エトキシ基からなる群から選ばれる少なくとも1種であり、Rが疎水性のメチル基またはエチル基であることが最も好ましい。さらに、 $m$ が1、即ちジシロキサン化合物であり、さらに $n$ が1または2、即ち塩素基、メトキシ基やエトキシ基などアルコキシ基が2個または4個、メチル基またはエチル基が4個または2個が好ましい。

## 【0019】

本発明の空隙を有するダイヤモンド微粒子膜は、単結晶あるいは多結晶シリコン基板、化合物半導体基板、石英基板、セラミック基板、ガラス基板などの半導体基板上に、或いは各種回路を形成した半導体製造中間製品基板上に形成する。これら基板表面は、酸化して親水化処理した後ダイヤモンド微粒子コロイド液を塗布する。

## 【0020】

前述のように、ダイヤモンド微粒子コロイド液を塗布して堆積させた膜自体を、本発明の前記(a)および/または(b)の一般式の化合物で処理するほかに、基板と膜との間の密着性を向上させることが必要となる場合がある。この場合、前記親水化処理と前記塗布の間に前記(a)および/または(b)の一般式の化合物、中でもヘキサクロロジシロキサン、ヘキサメトキシジシロキサンのいずれか或いはこれらの混合物で前処理することにより、基板とダイヤモンド微粒子膜との密着性を向上させることもできる。この際、十分反応させるために必要に応じて、適宜、乾燥、加熱などの処理を行うこともできる。

## 【0021】

本発明では、(b)の一般式  $X_3Si(OSi)_mX_3$  において、XがC1からC6のアルコキシ基またはフェノキシ基である場合は、(a)物質と混合しないで処理剤としてしよいうることができる。本物質は、室温または加熱によってダイヤモンド微粒子表面のヒドロキシ基と反応し、微粒子間を架橋することができる。

## 【0022】

基板上に形成した強化後のダイヤモンド微粒子表面にヒドロキシ基や、ヘキサクロロジシロキサン残基のシラノール基が残存している場合は、ヘキサメチルジシラザン、モノメトキシシラン、モノクロロシランなどで処理して疎水化しても良い。

## 【0023】

本発明で用いるダイヤモンド微粒子は、精製工程で硫酸や硝酸を用いる場合があるため、その表面にはスルホ基やカルボキシ基が生成する場合がある。この場合には、これらの基にカルシウム、ストロンチウム、バリウム、水銀、銀、鉛、ラジウムからなる群の少なくとも1種の金属イオンを結合させてもよい。これら金属イオンで低誘電率膜を処理する方法は、空隙を有するダイヤモンド微粒子膜を形成した後、前記金属の水酸塩、塩酸塩、硝酸塩など水溶性塩を選んでこれを水に溶解し、この溶液を前記のダイヤモンド微粒子膜の空隙中に含浸させ、ダイヤモンド微粒子表面に結合しているカルボキシ基及び/又はスルホ基と結合させるか、あるいは、前記金属塩溶液をダイヤモンド微粒子分散液に添加する方法などがある。ここで不要な前記金属塩を除去するために、十分な水洗をした後、乾燥する。尚、金属塩処理と前記微粒子結合処理と合わせて行う場合は、どちらを先に行ってもよいが、前者を先行して行う方が処理しやすい。

## 【0024】

さらに、前記金属塩処理と上記のヘキサメチルジシラザンなどによる疎水化剤処理とを合わせると両方の効果が現われ、さらに絶縁抵抗、絶縁破壊電圧を向上させる事ができる。

## 【0025】

本発明で用いるダイヤモンド微粒子は、粒子径が1nmから、1,000nmの固体粒子で、純度は95%以上に精製されていることが好ましい。また、本発明の低誘電率膜の空隙率は、40%から80%であることが好ましい。40%以下になると、主としてダイヤモンド微粒子の粒子径分布が広い場合で、誘電率が3以上となり好ましくない。また、これが80%以上では機械的強度が得られず実用性に乏しい。

## 【0026】

ダイヤモンド微粒子コロイド作成には、一般に水媒体が用いられるが、分散媒中のダイヤモンド微粒子は前記粒子径の一次粒子に分散している事が好ましいが、見かけ上30nmから1000nm程度に凝集して二次粒子を形成していても使用できる。分散させるために、前述の誘電率、電気抵抗値、絶縁破壊電圧などの物性を悪下させない程度の範囲内で、公知の微粒子分散剤や公知の粘度調整剤を使用してもよい。

## 【0027】

本発明のダイヤモンド微粒子膜は、空隙を有しているため、当然、その表面は粗である。ので緻密化を行うことが好ましい。そのためには、SOG (Spin on Glass) 法、SG (Silicate Glass) 膜法、BPSG (ホウ素燐SG) 膜法、プラズマCVD法等公知の方法、あるいは5 nm以下のダイヤモンド超微粒子分散液の塗布法などを用いることができる。

#### 【0028】

少なくとも前記 (a) および/または (b) の一般式の化合物を含む化合物で、ダイヤモンド微粒子コロイド液を塗布し形成した堆積膜を処理する温度は、室温から400℃の範囲で実施する。前記化合物を希釈する溶剤の沸点にもよるが、好ましくは50℃から150℃程度の間の温度で処理し、同時に反応させる。また、室温で、ダイヤモンド微粒子堆積膜を前記化合物含有蒸気または液体で処理した後、40℃から400℃、好ましくは50℃から150℃程度の間の温度で加熱し反応させることもできる。

#### 【0029】

本発明は、前述のような低誘電率膜を一構成要素とする電子部品をも含む。ここで電子部品としては、高集積度、高速動作型の多層配線型半導体集積回路が最も好適であるが、本発明のダイヤモンド微粒子と空隙とからなる低誘電率膜（ポーラスダイヤモンド微粒子膜）を有する一般の半導体素子やマイクロマシン、一般のコンデンサなどであってもよい。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0030】

以下に本発明の実施例を記すが、この実施例のみに本発明が限定されるものではない。

#### 【実施例1】

#### 【0031】

<コロイド液の調整> 石英製ビーカー中の純水中に、精製したダイヤモンド微粒子を5重量%、ジメチルアミンを0.1重量%、分子量500万のポリエチレングリコールを1重量%となるように投入し、超音波槽にそのビーカーを浸して1時間かけて充分分散させて、灰色をした粘稠な分散液を得た。

#### <スピンコート工程>

よく洗浄したシリコン基板を一辺が約20mmの正方形に切断し、表面を親水化処理した後、スピンコートのスピンドル上に置き、前記のコロイド液を流下して基板を1500rpmで回転させ遠心力で均一に塗布した。

#### <乾燥工程>

ダイヤモンド微粒子液を塗布したシリコン基板を風乾して膜形成させた後、300℃ホットプレート上に置き1時間乾燥した。

#### <膜構造強化処理>

このダイヤモンド微粒子膜付きシリコン基板を、密閉容器に入れてジクロロメタンに10%溶解したジクロロテトラメチルジシロキサン (DCTMDS) の入った蒸気に常温で1時間さらして粒子間に十分浸透させ、その後さらに300℃で1時間過熱処理した。

#### <電流-電圧特性の測定>

大気中で水銀電極を膜上に置きシリコン基板との間に電圧をかけ、電圧、電流値、絶縁破壊電圧を測定し、予め測定していた膜厚で割って電解強度を算出した。

#### 【0032】

実施例1で得た厚さ510nmの膜の電圧/電流特性を図1に示す。DCTMDS処理したポーラスダイヤモンド微粒子膜は、後述の比較例1で得た膜と比較して、絶縁破壊電圧は0.57MV/cmから2.0MV/cm (測定限界) 以上の3.5倍以上に向上した。絶縁抵抗を表すリーク電流は、同様に比較して電圧が0.57MV/cmで $1 \times 10^{-4}$  A/cm<sup>2</sup>から $7 \times 10^{-8}$  A/cm<sup>2</sup>に、1MV/cmでは $1 \times 10^{-7}$  A/cm<sup>2</sup>に減少した。また、比誘電率は、処理の前後で変わらず2.0であった。図1中の破線で示すように、一般に、絶縁破壊電圧は1MV/cm以上、リーク電流は $1 \times 10^{-6}$  A/cm<sup>2</sup>以下が要求されるが、本発明はこれらのいずれをもクリアし、実用段階に達している。

また、本実施例のポーラスダイヤモンド微粒子膜は、電気特性測定用プローブを接触さ



せて測定する際や、指触摩擦しても粒子間結合が破壊するなどの不都合はなく、十分な強度を保持していた。

【実施例 2】

【0033】

実施例 1 における 10% DCTMDS に代えて、1 重量% DCTMDS と 1 重量% ヘキサクロロジシロキサン混合液体のガスで処理した他は、同様な手順で実験した。測定結果は、膜厚は 680 nm で、比誘電率は 2.1 であった。絶縁破壊電圧は 1 MV/cm 以上の 1.43 MV/cm、リーク電流は電圧が 1 MV/cm で  $1 \times 10^{-6}$  A/cm<sup>2</sup> 以下の  $2 \times 10^{-7}$  A/cm<sup>2</sup> を達成した。また、本実施例のポラスダイヤモンド微粒子膜は、指触摩擦しても粒子間結合が破壊するなどの不都合はなく、十分な強度を保持していた。

【比較例 1】

【0034】

実施例 1 における 10 重量% DCTMDS に代えて、1 重量% ヘキサクロロジシロキサン溶液のガスで処理した他は、同様な手順で実験した。膜厚は 510 nm であった。このポラスダイヤモンド微粒子膜は、絶縁破壊電圧 0.6 MV/cm、この直前でのリーク電流は  $1 \times 10^{-4}$  A/cm<sup>2</sup> であり、実用化基準の絶縁破壊電圧 1 MV/cm 以上、リーク電流  $1 \times 10^{-6}$  A/cm<sup>2</sup> 以下の要求を達成できていない。

【産業上の利用可能性】

【0035】

本発明は、耐熱性及び熱伝導性の高い無機低誘電率膜であるポラスダイヤモンド微粒子膜を用いて、比誘電率 2.0 を実現した。また、絶縁破壊電圧も実用基準である 1 MV/cm を超えて 2.0 MV/cm (測定限界) 以上を達成し、リーク電流値も実用電圧では 1 MV/cm で  $1 \times 10^{-7}$  A/cm<sup>2</sup> を達成した。これにより、多層配線半導体素子や半導体キャパシタばかりでなく、高性能コンデンサ、配線間絶縁体その他の高性能汎用電子部品の製造も可能となり、コンピュータを始めとする電子産業の発展に大きな寄与をすることができる。

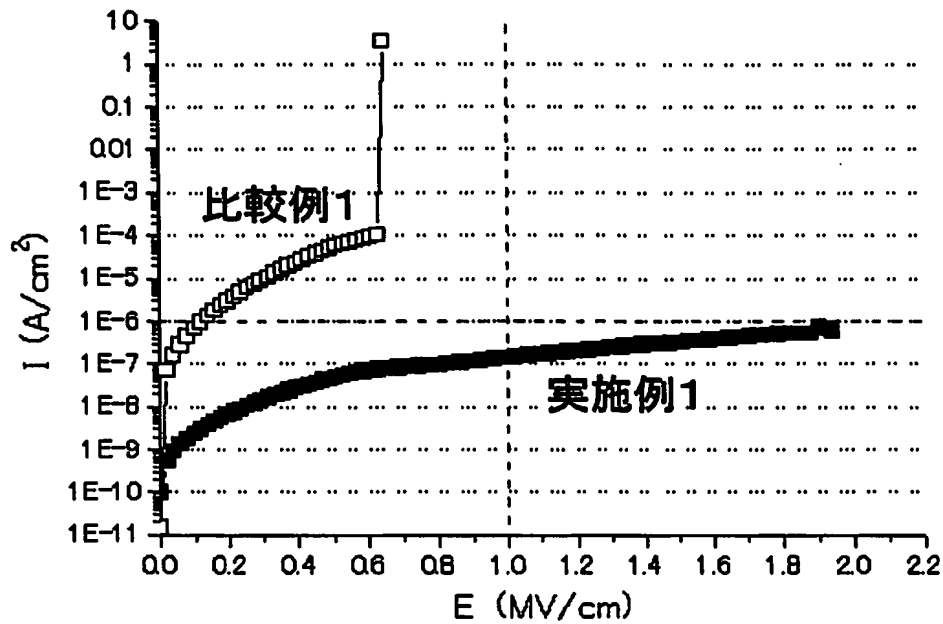
【図面の簡単な説明】

【0036】

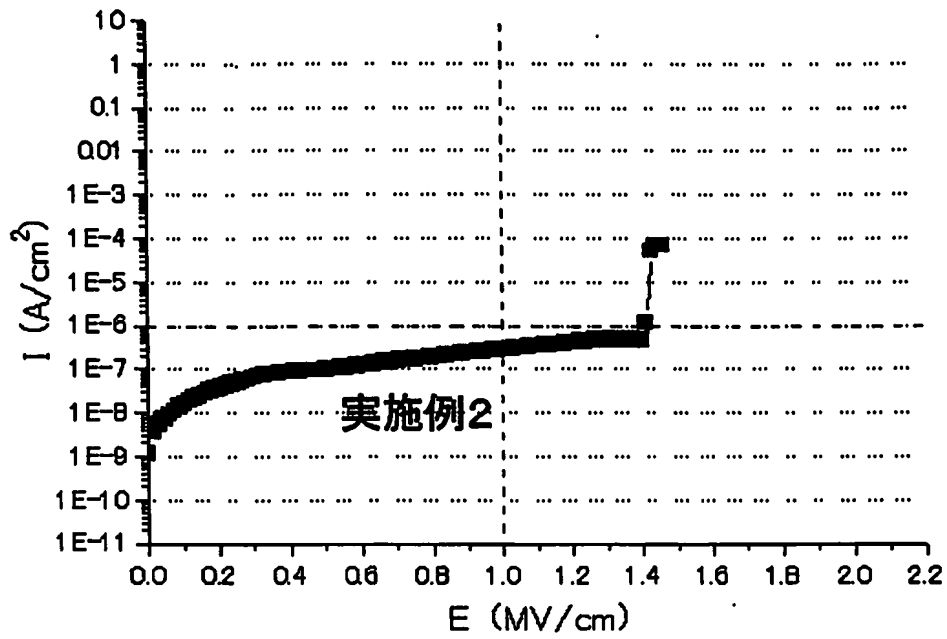
【図 1】本発明のポラスダイヤモンド微粒子膜の実施例 1 (■印) と比較例 1 (□印) で得た低誘電率膜の電流-電圧特性を表すグラフである。

【図 2】本発明のポラスダイヤモンド微粒子膜の実施例 2 で得た低誘電率膜の電流-電圧特性 (■印) を表すグラフである。

【書類名】図面  
【図1】



【図2】



**【書類名】要約書****【要約】**

**【課題】** ポーラスダイヤモンド微粒子膜は、熱伝導性が高く高耐熱性の低誘電率膜となることが見出され、半導体集積回路素子の多層配線用絶縁膜として期待されているが、電流-電圧特性が不十分で実用化されていなかった。

**【解決手段】** ジクロロテトラメチルジシロキサンないしジメトキシテトラメチルジシロキサンまたはこれらの少なくとも一方を含む強化剤で、ポーラスダイヤモンド微粒子堆積膜を処理し粒子間架橋させると、微粒子を固定することができ、且つ、実用基準である、絶縁破壊電圧  $1\text{ MV/cm}$  以上リーク電流  $10-6\text{ A/cm}^2$  以下をクリアした。

**【選択図】** 図 1

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2004-073600
受付番号	50400426570
書類名	特許願
担当官	関 浩次 7475
作成日	平成 16 年 7 月 15 日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

【提出日】	平成16年 3月15日
【特許出願人】	申請人
【識別番号】	591213232
【住所又は居所】	広島県深安郡神辺町字道上 1 5 8 8 番地の 2
【氏名又は名称】	ローツェ株式会社
【特許出願人】	
【識別番号】	396020800
【住所又は居所】	埼玉県川口市本町 4 丁目 1 番 8 号
【氏名又は名称】	科学技術振興事業団

【書類名】 手続補正書  
【提出日】 平成16年 7月21日  
【あて先】 特許庁長官  
【事件の表示】  
【出願番号】 特願2004- 73600  
【補正をする者】  
【識別番号】 591213232  
【氏名又は名称】 ローツェ株式会社  
【代表者】 崎谷 文雄  
【発送番号】 032182  
【手続補正1】  
【補正対象書類名】 特許願  
【補正対象項目名】 特許出願人  
【補正方法】 変更  
【補正の内容】  
【特許出願人】  
【識別番号】 591213232  
【氏名又は名称】 ローツェ株式会社  
【代表者】 崎谷 文雄  
【特許出願人】  
【識別番号】 503360115  
【氏名又は名称】 独立行政法人科学技術振興機構  
【代表者】 沖村 憲樹

特願 2004-073600

出願人履歴情報

識別番号

[591213232]

1. 変更年月日

1996年11月27日

[変更理由]

住所変更

住所

広島県深安郡神辺町字道上1588番地の2

氏名

ローツェ株式会社

特願 2004-073600

出願人履歴情報

識別番号

[396020800]

1. 変更年月日

1998年 2月24日

[変更理由]

名称変更

住 所

埼玉県川口市本町4丁目1番8号

氏 名

科学技術振興事業団



特願 2004-073600

出願人履歴情報

識別番号

[503360115]

- |          |                 |
|----------|-----------------|
| 1. 変更年月日 | 2003年10月 1日     |
| [変更理由]   | 新規登録            |
| 住 所      | 埼玉県川口市本町4丁目1番8号 |
| 氏 名      | 独立行政法人 科学技術振興機構 |
|          |                 |
| 2. 変更年月日 | 2004年 4月 1日     |
| [変更理由]   | 名称変更            |
| 住 所      | 埼玉県川口市本町4丁目1番8号 |
| 氏 名      | 独立行政法人科学技術振興機構  |

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**